PCT/JP01/01712

<u>06.03.01</u>

B 玉 特

PATENT OFFICE JAPANESE GOVERNMENT REC'D 20 APR 2001 WIPO PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office. JK

出願年月日

Date of Application:

2000年 3月13日

出願番 Application Number:

特願2000-068048

H 鯂 人 Applicant (s):

三并金属鉱業株式会社

191926486

PRIORITY

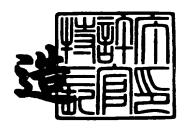
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2001年 4月 6日

特許庁長官 Commissioner. Patent Office







【書類名】

特許願

【整理番号】

00028

【提出日】

平成12年 3月13日

【あて先】

特許庁長官 近藤 隆彦 殿

【国際特許分類】

H01L 21/285

【発明の名称】

複合材料の製造方法及び該方法により製造されるスパッ

タリングターゲット

【請求項の数】

5

【発明者】

【住所又は居所】

埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業株式会社

総合研究所内

【氏名】

久保田 高史

【発明者】

【住所又は居所】

埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業株式会社

総合研究所内

【氏名】

渡辺 弘

【特許出願人】

【識別番号】

000006183

【氏名又は名称】

三井金属鉱業株式会社

【代表者】

宮村 眞平

【代理人】

【識別番号】

100086726

【弁理士】

【氏名又は名称】

森 浩之

【手数料の表示】

【予納台帳番号】

016517

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

明細書 1

【物件名】

図面 1

【物件名】

要約書 1

【包括委任状番号】 9905328

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 複合材料の製造方法及び該方法により製造されるスパッタリングターゲット

【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に複数の材料から成る複合材料を製造する方法において、原子又は分子レベルの複数材料を別個の材料源から放射させて前記基板上に 堆積させ、いずれかの材料が高分散した複合材料を所定厚以上の厚みで形成する ことを特徴とするバルク状複合材料の製造方法。

【請求項2】 原子又は分子レベルで材料を放射させる手段がスパッタリング法又は蒸着法である請求項1に記載のバルク状複合材料の製造方法。

【請求項3】 得られたバルク状複合材料を圧延加工及び熱処理、又は再溶解するようにした請求項1に記載のバルク状複合材料の製造方法。

【請求項4】 いずれかの材料が高分散した複数の材料から成る複合材料から構成される薄膜の製造方法において、原子又は分子レベルの複数材料を別個の放射源から放射させて基板上に堆積させ、いずれかの材料が高分散した所定厚以上の厚みを有するバルク状複合材料を作製し、該バルク状複合材料をターゲットとして使用して、薄膜を製造することを特徴とする方法。

【請求項5】 原子又は分子レベルの複数材料を別個の放射源から放射させて基板上に堆積させ、いずれかの材料が高分散した所定厚以上の厚みを有するバルク状複合材料から成ることを特徴とするスパッタリングターゲット。

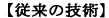
【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発明は、2種以上の通常は分散しない材料を互いに均一分散又は混合させて 複合材料を製造するための方法及び該方法により製造されるスパッタリングター ゲットに関し、より詳細には例えばスパッタリング法や蒸着法を使用して炭化珪 素や炭素等の非金属材料をアルミニウム等の金属材料中に均一分散させた複合材 料を製造するための方法及びスパッタリングターゲットに関する。

[0002]



従来、金属材料中に非金属粒子を分散させる方法として、半溶融攪拌法(コンポキャスティング法)や粉末冶金法が知られている。半溶融攪拌法は、半溶融状態の金属中に非金属粒子を投入して強攪拌し、強制的に粒子を分散させてバルク状複合材料を得る方法である。この方法は半溶融状態にすることで溶融金属に濡れにくい非金属粒子の分離を防いで金属中に分散させる方法であるが、金属が鋳造時にシャーベット状であるため得られる成形体に気泡が入ったり、ガスを巻き込んだりして密度が低くなることがある。更に投入する成分が粒子であり、仮に高分散させることができたとしても、粒子レベルの分散でしかなく、より高度の分散レベルつまり原子又は分子レベルの高分散度は得られない。

[0003]

又ホットプレス法やHIP法で代表される粉末冶金法では、予め金属粉と非金属粉を所定の混合比で混合しておき、これを成形及び焼結して成形体を得る方法である。該方法では出発原料が粉体なので、酸化されやすい金属の場合には成形体の酸素濃度が高くなり、ターゲット材として使用できない場合があり、更に半溶融攪拌法と同様に、最良でも粒子レベルの高分散度が得られるに過ぎない。

従って従来は、金属材料中に原子又は分子レベルの非金属材料が分散したバルク状複合材料を製造することはできなかった。

[0004]

【発明が解決しようとする課題】

本発明者等は、ある組成のアルミニウム基合金製の薄膜を作製し評価したところ、液晶ディスプレイの薄膜配線、電極、半導体集積回路の配線等を構成する耐熱性の低抵抗アルミニウム薄膜として使用できる非常に優れた特性を有していることを確認した。しかし優れた特性を有する薄膜を作製するためのスパッタリングのターゲット材は、半溶融攪拌凝固法などの従来方法では作製することができない組成であるという問題があった。

[0005]

又アルミニウム製のターゲット材に原子レベルの炭素を添加すると顕著な粒径 減少が生ずることが知られているが、前述した通り、半溶融攪拌法や粉末冶金法 を使用する従来技術では、炭素を金属材料中に高分散度で分散させることができず、実質的に炭素が高分散したバルク状複合材料は得られていない。

更に前記従来技術では、特に金属と非金属間及び非金属と非金属間の濡れ性が低くなり、密度が高くかつ不純物混入がないという条件が満たされにくい。又金属と金属の間の場合にも、低融点金属と高融点金属を均一分散させることが困難なことがある。

[0006]

炭素と、チタン等の第IVa族の金属とアルミニウムの複数材料から成る半導体の配線等をスパッタリング法を使用して行う方法も知られているが(特開平2-292821号公報)が、この方法によれば得られる薄膜の結晶の粒径を小さくして断線の可能性を低くすることはできても、モザイク状のターゲットを使って成膜しているので、試験的に炭素を膜中に混入させることはできても、組成分布やダスト発生の問題から実際の生産には使用できない。

[0007]

従って本発明は、主材料中に原子又は分子レベルで分散したバルク状複合材料 を製造する方法を提供することを目的とする。

[0008]

【課題を解決するための手段】

本発明は、基板上に複数の材料から成る複合材料を製造する方法において、原子又は分子レベルの複数材料を別個の材料源から放射させて前記基板上に堆積させ、いずれかの材料が高分散した複合材料を所定厚以上の厚みで形成することを特徴とするバルク状複合材料の製造方法であり、この方法で製造したバルク状複合材料をターゲット材として使用して薄膜を製造することもできる。又本発明はこのようにして製造したバルク状複合材料から成るスパッタリングターゲットを含む。

[0009]

以下本発明を詳細に説明する。

本発明は、炭化珪素や炭素などの非金属材料や金属材料を金属材料中又は非金属材料中に均一分散させる際に、スパッタリング法や蒸着法等の原料を原子又は

分子レベルで分散させる手法を採用してバルク状複合材料を製造する方法である

アルミニウム等の金属材料と炭化珪素や炭素等の非金属材料をそれぞれ別個の放射源からスパッタリング等により基板表面方向に放射させると、それぞれの材料が原子又は分子レベルで基板に達し、非金属材料が原子又は分子レベルで金属材料中に分散した複合材料が基板上に堆積する。

[0010]

このようにして得られる複合材料は、液晶ディスプレイの薄膜配線、電極、半 導体集積回路の配線等を構成する高耐熱性で低抵抗アルミニウム複合薄膜を形成 するために使用されるスパッタリングターゲット材としての他、自動車部品や航 空機部品等に使用される複合材料等として多方面で使用できる。

原子又は分子レベルで分散した複合材料は、このままターゲット材等として所 定用途に使用しても、更に望ましい所定形状及び所望の組成比を得るために、再 溶解し、次いで成形するようにしても良い。

[0011]

従来技術では、一般的な真空溶解法により材料の分散、特に溶解金属中に非金属材料を投入して分散することを意図している。しかし複数材料に対して単に真空溶解法を適用するだけでは非金属材料が溶解金属に対して濡れ性を有しないため、手動による攪拌程度では全く分散が起こらない。つまり半溶融攪拌法では、本来濡れない状態にある非金属材料を強制的に溶解金属内に押し込めて分散しているのである。しかしながら当然にこのような手法では分散や混合が十分に起こらず、所望の分散特性が得られないという欠点がある。

[0012]

従って本発明方法では、複数の材料を別個の放射源から原子又は分子レベルで放射させて基板上に堆積させる。この放射法としては、具体的には前述のスパッタリング法や蒸着法が適している。スパッタリングや蒸着によると、原子又は分子レベルの材料が別の材料源から基板上に高速で供給されるため、複数の材料が任意の組成比で、ほぼ均一に分散する。

[0013]

本発明方法ではベースとなる第1の材料(通常は金属材料)と分散させるべき 1種又は2種以上の第2の材料(通常は非金属材料)のスパッタリングターゲット又は蒸着源を用意し、マルチ(通常は2又は3)カソードマグネトロンスパッタ装置や蒸着装置を使用して基板上へ複数の材料を高分散又は高混合状態で堆積 させる。特殊な態様として、第1の材料と第2の材料を別個に、つまり積層状態で堆積させても良く、金属材料と非金属材料を積層する場合には、数オングストロームの膜厚で制御可能であり、マクロ的にはこの時点でも複合材料となっている。

[0014]

本発明では、第1の材料としてアルミニウム等の金属材料を使用し、第2の材料として炭素等の非金属材料を使用して、金属材料中に比較的少量の非金属材料を高分散させて基板上に複合材料を形成することを主要な態様とし、第2の材料は複数種であっても良い。

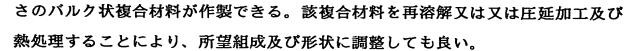
この他に第1材料及び第2材料とも相互に混合しにくい非金属材料であっても良く、更に両材料とも、相互に融点が大きく異なり通常の方法では合金を形成しにくい金属であっても良く、このような合金も本発明の複合材料に含まれる。更に第1の材料が非金属材料で、第2の材料が金属材料であっても良い。更に第1の材料をベースとし第2の材料を第1の材料中に分散させるという考え方でなく、両材料を相互に十分に分散させた母材を作製し続いて再溶解により複合材料を製造するようにしても良い。

[0015]

本発明で使用できる装置としては、静止基板のバッチタイプと、回転基板のカルーセルタイプがある。板状基板等の静止基板の場合には粒子状材料をスパッタリング等で堆積させる際に、例えばマルチカソードマグネトロンスパッタ装置のターゲットをある角度だけ回転させて基板の全面に粒子が到達するようにすれば 均一な組成のバルク状複合材料が得られる。これを圧延加工及び熱処理すると、所望組織の板状の複合材料が得られる。

回転基板を使用すると、該回転基板の回転速度を一定にしておくと、回転基板の表面の各ポイントへの粒子状材料の供給速度が一定になり、均一組成で均一厚

. [



[0016]

基板の材質は、使用する材料、例えば第1の材料と同一であることが望ましい

本発明における再溶解操作は、一旦生成した複合材料(母材)を溶融させて、より均一な組成の複合材料を得るための操作で、得られる母材が十分な流動状態に導かれる温度に加熱する。好ましい温度範囲は対象とする材料にもよるが、融点以上で蒸発温度以下である。この再溶解操作時に、第1の材料を添加溶融して材料の組成比の調整を行っても良い。

[0017]

通常の再溶解法では、非金属材料が分離する可能性があるが、本発明方法で非 金属材料を使用する場合にも、他の金属材料や非金属材料と濡れた状態にあり、 非金属材料の分離の可能性は殆どない。

又母材を堆積する際に最終組成が得られるようにしておけば、再溶解しなくと も、圧延加工及び熱処理により所望の組織を生成できる。

[0018]

【発明の実施の形態】

次に本発明に係る複合材料の製造方法に使用可能な装置を図示の例に従って説明する。

図1はスパッタリングにより板状の静止基板に金属材料及び非金属材料を堆積させる手法を例示するもので、図1 a は堆積前、図1 b は堆積後の状態を示す概略図である。

[0019]

図1 a において、1 は板状の静止基板で、該基板1と対向するように金属材料 用基材2と非金属材料用基材3が設置されている。該金属材料用基材2表面には 金属材料用ターゲット4が、又非金属材料用基材3表面には非金属材料用ターゲット5がそれぞれ設置されている。

この状態で電源(図示略)から金属材料用基材2と非金属材料用基材3に別個

に通電すると、通電量に応じて金属材料用ターゲット4及び非金属材料用ターゲット5の表面からそれぞれ金属材料粒子及び非金属材料粒子が原子又は分子レベルで静止基板1方向に加速されて金属材料粒子及び非金属材料粒子が、図1bに示すように静止基板1表面に母材層6として堆積する。

[0020]

このように形成された母材層 6 はスパッタリングによる原子又は分子レベルの 金属材料粒子及び非金属材料粒子の静止基板 1 表面への堆積であり、得られた母 材は溶解金属への濡れ性が向上している。

次いでこの母材層6をこのまま、又は前記金属材料又は非金属材料を添加しながら、加熱して再溶解させる。必要に応じて濃度調整が行われて、所望の性能を有する複合材料に変換される。この再溶解の代わりに、又は再溶解の後に圧延加工及び熱処理により所望の組織を有する複合材料を得るようにしても良い。

[0021]

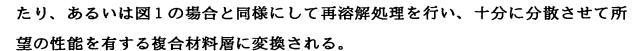
図2は蒸着により静止基板に金属材料及び非金属材料を堆積させる手法を例示するもので、図2aは堆積前、図2bは堆積後の状態を示す概略図であり、図1と同じ部材にと同一符号を付して説明を省略する。

図2 a において、静止基板1と対向するように金属材料用蒸着るつば2 a と非金属材料用蒸着るつば3 a が設置されている。該金属材料用蒸着るつぼ2 a 内には金属材料用蒸着源4 a が,又非金属材料用蒸着るつぼ3 a 内には非金属材料用蒸着源5 a がそれぞれ設置されている。

[0022]

この状態で電源(図示略)からまず金属材料用蒸着るつぼ2a及び非金属材料蒸着るつぼ3aに同時に通電すると、通電量に応じて金属材料用蒸着源4aの表面から金属材料粒子が原子又は分子レベルで静止基板1方向に加速されて(矢印参照)、かつ非金属材料用蒸着源5aの表面から非金属材料粒子が原子又は分子レベルで静止基板1方向に加速されて(矢印参照)、両材料粒子がほぼ均一に混合し又は分散した母材層6が生成する。量産機の場合、蒸着原料をロッド状として、連続的に供給することも有効である。

このように形成された母材層は、基板から剥離してターゲット材として使用し



[0023]

図3はスパッタリングにより回転基板に金属材料及び非金属材料を堆積させる 手法を例示するもので、図3aは堆積前、図3bは堆積後の状態を示す概略図で ある。

図3 a において、回転基板11と対向しかつ互いに90°の角度を持って互いに離間している金属材料用基材12と非金属材料用基材13が設置されている。該金属材料用基材12には金属材料用ターゲット14が、又非金属材料用基材13には非金属材料用ターゲット15がそれぞれ設置されている。

[0024]

回転基板11を回転させながら、電源(図示略)から金属材料用基材12と非金属 材料用基材13に別個に通電すると、通電量に応じて金属材料用ターゲット14及び 非金属材料用ターゲット15の表面からそれぞれ金属材料粒子及び非金属材料粒子 が原子又は分子レベルで回転基板11方向に加速されて金属材料粒子及び非金属材 料粒子が、図3 bに示すように回転基板1表面に母材層16として堆積する。この 態様では、回転基板11の全面が均一に金属材料粒子及び非金属材料粒子と接触し て均一組成で均一厚さの母材が形成され、実際には数 Å の厚さで層状になった、 非金属材料中に金属材料が微細に分散した母材となる。

このように形成された母材層16は図1の場合と同様にして再溶解処理を行い、 十分に分散させると、所望の性能を有する複合材料層に変換される。

[0025]

図4は回転基板に、スパッタリングにより金属材料を、蒸着により非金属材料 を堆積させる手法を例示するもので、図4 a は堆積前、図4 b は堆積後の状態を 示す概略図である。

図4 aにおいて、回転基板11と対向しかつ互いに90°の角度を持って互いに離間している金属材料用基材12 a と非金属材料用蒸着るつぼ13 a が設置されている。該金属材料用基材12 a には金属材料用ターゲット14 a が、又非金属材料用蒸着るつぼ13 a には非金属材料用蒸着源15 a がそれぞれ設置されている。

この状態で電源(図示略)から金属材料用基材12 a と非金属材料用蒸着るつぼ 13 a に別個に通電すると、通電量に応じて金属材料用ターゲット14 a 及び非金属 材料用蒸着源15 a の表面からそれぞれ金属材料粒子及び非金属材料粒子が原子又 は分子レベルで回転基板11方向に加速されて金属材料粒子及び非金属材料粒子が、図4 bに示すように回転基板1表面に母材層16 a として堆積する。

このように形成された母材層16 a は図1 の場合と同様にして再溶解処理を行い十分に分散させると、所望の性能を有する複合材料層に変換される。

[0026]

(実施例)

次に本発明方法による複合材料の製造に関する実施例を記載するが、該実施例 は本発明を限定するものではない。

[0027]

実施例1

図3に示した回転基板を使用してアルミニウム-炭素複合材料を作製した例に ついて説明する。

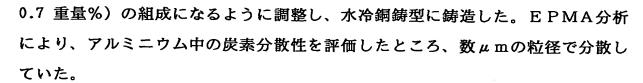
スパッタリングターゲットとして、それぞれ縦127 mm、横279.4 mm、厚さ10mmのアルミニウム(99.999%)及び炭素(99.9%)の2種類の材料を用意した。スパッタリング装置は3カソード・マグネトロンスパッタリング装置とし、3カソードのうちの2カソードを使用した。又1面が縦279 mm、横80mmのステンレス板8枚をそれぞれの縦方向の辺同士を接着した8角形の筒状体の回転基板上に厚さ12μmのアルミニウム箔を巻きつけ、この上にアルミニウムと炭素の積層膜を堆積させた。

[0028]

スパッタリング条件はスパッタリング圧力が0.87パスカル、投入電力がアルミニウムについて1.8~kW($5W/cm^2$)、炭素について1.2~kW($3.4~W/cm^2$)、基板の回転数は7~r~p~mとした。

得られた堆積膜(母材)は、アルミニウムの膜厚40Å、炭素の膜厚4Åの積層膜で、炭素濃度は7.98重量%(16.3原子%)であった。

この母材をアルミニウム (5N) とともに真空溶解し、アルミニウムー炭素 (



更に本材料をスパッタリングターゲットに加工し、連続的に成膜を行ったところ、ターゲットの使い始めから使い切るまで膜組成は一定で、耐ヒロック性、電気比抵抗などの性能も安定していた。

[0029]

比較例1

アルミニウム (5 N) 2 kgをカーボンるつぼ内で700 ℃程度に昇温して一度溶解した後、640 ℃まで冷却し、半溶融状態 (固液相共存状態) にした。

この状態で、平均粒径150 μmの炭素粉末をアルミニウム溶湯中に15g投入し、攪拌機で強攪拌した後、水冷銅鋳型に縦鋳造した。炭素濃度を分析した結果、200 mm×200mm(厚さ)の鋳造板の下の部分は0.003 ~0.008 重量%であり、炭素は殆ど添加されていなかった。インゴットを目視で観察したところ、(インゴット上部に炭素が偏析していた。

これはアルミニウムと炭素の比重の違いから炭素が上方に浮き上がったためと 考えられる。

[0030]

【発明の効果】

本発明は、基板上に複数の材料から成る複合材料を製造する方法において、原子又は分子レベルの複数材料を別個の材料源から放射させて前記基板上に堆積させ、いずれかの材料が高分散した複合材料を所定厚以上の厚みで形成することを特徴とするバルク状複合材料の製造方法(請求項1)である。

従来の真空溶解法では、真空溶解すべき母材を構成する複数の材料が十分に分散していないため、真空溶解しても炭素等の非金属材料が溶融金属材料中に十分分散せず所望の性能の複合材料が得られていない。

[0031]

これに対し本発明では、真空雰囲気又はアルゴンガス等の不活性ガス雰囲気で 材料を原子又は分子レベルで加速し基板上へ堆積することによりバルク状複合材 料を得ている。材料を原子又は分子レベルで堆積させるため、所望材料が複合材料中に高分散している。又複数材料を別個の材料源から放射させるようにしているため、各材料源への通電量で各材料の放射量、従って基板への供給量を調節でき、これにより所望の組成比の複合材料が得られる。

各材料を原子又は分子レベルで放射させる手段はスパッタリング法又は蒸着法であることが望ましい(請求項2)。

[0032]

又得られたバルク状複合材料を再溶解し成形すると(請求項3)、更に高分散 した複合材料が得られ、この際に第1の材料を添加すると、この段階での組成比 の調節ができる。

又本発明では、上記のようにして得られたバルク状複合材料をターゲットとして使用して、薄膜を製造するようにしても良く(請求項4)、これにより複数材料を同時にスパッタリング等して製造される薄膜より数段優れた性能を有する薄膜が得られる。

このように上述した方法で得られるバルク状複合材料はスパッタリングターゲットとして使用することができ(請求項5)、このスパッタリングターゲットは材料が原子又は分子レベルで分散しているため、従来より遙かに優れたスパッタリングターゲットとなる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

スパッタリングにより板状の静止基板に金属材料及び非金属材料を堆積させる 手法を例示する概略図で、図1 a は堆積前、図1 b は堆積後の状態を示す。

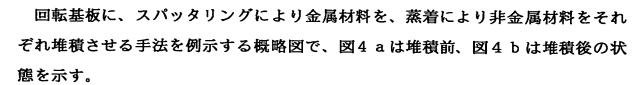
【図2】

蒸着により静止基板に材料を堆積させる手法を例示する概略図で、図2aは堆積前、図2bは堆積後の状態を示す。

【図3】

スパッタリングにより回転基板に材料を堆積させる手法を例示する概略図で、 図3 a は堆積前、図3 b は堆積後の状態を示す。

【図4】



【符号の説明】

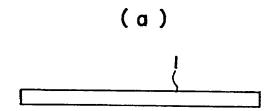
- 1 静止基板
- 2、2a 金属材料用基材
- 3、3 a 非金属材料用基材
- 4、4a 金属材料用ターゲット
- 5 5a 非金属材料用ターゲット
- 6 母材層
- 11 回転基板
- 12、12 a 金属材料用基材
- 13、13 a 非金属材料用基材
- 14、14a 金属材料用ターゲット
- 15、15 a 非金属材料用ターゲット
- 16、16 a 母材層

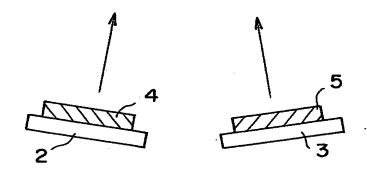


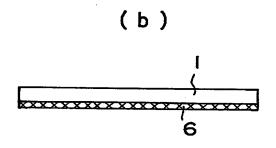


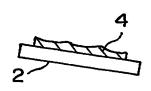
図面

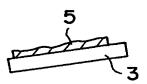
【図1】



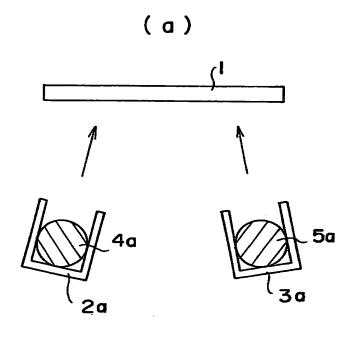


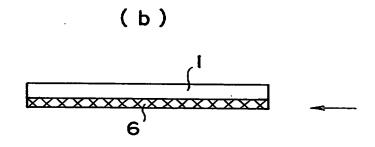


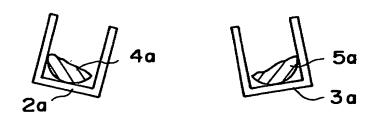






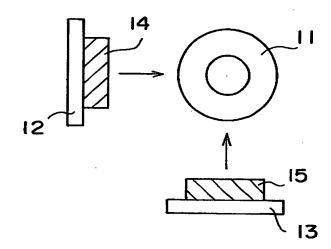




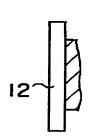


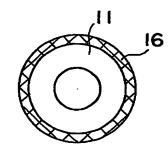






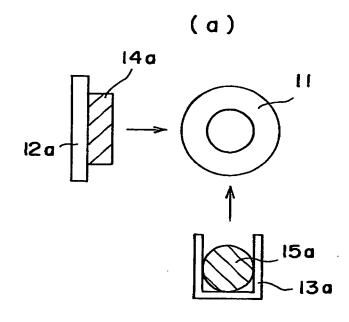
(b)



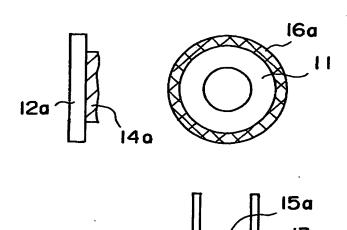














【要約】

【課題】 従来の真空溶解法では、非金属材料を溶解金属中に投入しても、濡れ性が劣るために、十分に分散した複合材料を得ることができない。本発明は、互いに濡れ性の劣る金属材料と非金属材料を高分散で複合化する方法を提供することを目的とする。

【解決手段】 回転基板11に金属材料ターゲット14と非金属材料ターゲット15から成る母材層16をスパッタリング法や蒸着法等の原子又は分子レベルで材料を堆積できるプロセスにより作製する。回転基板に堆積する複数材料が原子又は分子レベルで供給されるため、互いに十分に分散した複合材料が提供される。

【選択図】 図3



出願人履歴情報

識別番号

[000006183]

1. 変更年月日 1999年 1月12日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都品川区大崎1丁目11番1号

氏 名

三井金属鉱業株式会社

THIS PAGE BLANK (USPTO)